

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-090028

(43)Date of publication of application : 04.04.1995

(51)Int.Cl.

C08F220/18

C08F 2/44

C08F 2/48

C09J 4/00

C09J 7/02

C09J 7/02

C09J 7/02

C09J 7/02

(21)Application number : 05-236370

(71)Applicant : SEKISUI CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 22.09.1993

(72)Inventor : NUMATA NORIO  
MINAMI KENICHI

(54) PHOTOPOLYMERIZABLE COMPOSITION, AND ADHESIVE TAPE AND PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE TAPE USING THE SAME

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the subject composition capable of giving an adhesive tape excellent in bond strength such as shear strength and peel strength and further giving a pressure sensitive adhesive tape excellent transparency by incorporating a monomer mixture of specific composition with a photopolymerization initiator and a specific filler.

CONSTITUTION: This photopolymerizable composition is obtained by incorporating 100 pts.wt. of a mixture composed of (A) 50-98wt.% of a (meth) acrylic 1-12C alkyl ester monomer, (B) 50-2wt.% of a polar group-contg. monomer copolymerizable with the component A (pref. acrylic acid) and (C) 0.01-1wt.% of a monomer copolymerizable with the component A and B and having at least two unsaturated double bonds (pref. epoxyacrylate) with (D) 0.01-5 pts.wt. of a photopolymerization initiator and (E) a filler selected from fibrous filler 0.2-20 $\mu$ m in mean particle diameter and 5 $\mu$ m-1mm in mean fiber length, porous fine particles 0.5-150 $\mu$ m in mean diameter, nonpolar resin fine particles 5-150 $\mu$ m in mean diameter and organic fine particles 1-50 $\mu$ m in mean diameter and  $\geq 90^{\circ}$  C in glass transition temperature.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 17.09.1996

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 2865534

[Date of registration] 18.12.1998

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 特 許 公 報 (B 2)

(11) 特許番号

第2865534号

(45) 発行日 平成11年(1999) 3月8日

(24) 登録日 平成10年(1998) 12月18日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>  
C 0 9 J 7/02  
// C 0 8 F 2/44  
2/48  
220/18

識別記号

F I  
C 0 9 J 7/02  
C 0 8 F 2/44  
2/48  
220/18

Z  
A  
C

請求項の数 3 (全 19 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平5-236370  
(22) 出願日 平成5年(1993) 9月22日  
(65) 公開番号 特開平7-90028  
(43) 公開日 平成7年(1995) 4月4日  
審査請求日 平成8年(1996) 9月17日

(73) 特許権者 000002174  
積水化学工業株式会社  
大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号  
(72) 発明者 沼田 憲男  
京都市左京区吉田上阿達町37  
(72) 発明者 已波 健一  
奈良市富雄元町4-2-29

審査官 杉原 進

(56) 参考文献 特開 昭62-34976 (J P, A)  
特開 昭60-28403 (J P, A)  
特開 平6-49415 (J P, A)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 接着性テープおよび粘着性テープ

1

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】 炭素数1~12のアルキル基を有する  
(メタ) アクリル酸エステルから選択される1種以上の  
(メタ) アクリル酸エステルモノマー (a) 50~98  
重量%、  
極性基を有し、かつ該 (メタ) アクリル酸エステルモノ  
マー (a) と共重合可能なモノマーから選択される1種  
以上のモノマー (b) 50~2重量%、および該 (メ  
タ) アクリル酸エステルモノマー (a) および該モノマ  
ー (b) と共重合可能であり、かつ分子内に不飽和二重  
結合を2個以上有するモノマー (c) 0.01~1重量  
%、を含有するモノマー混合物100重量部に対し、  
光重合開始剤 (d) 0.01~5重量部、および  
以下の (e1)、(e5)、(e6) および (e9) か  
らなる群より選択される少なくとも一種のフィラーを含

2

有する光重合性組成物をシート状に塗工し、次いでその  
シート状の光重合性組成物に光を照射することによって  
得られる接着性テープ：

平均直径が0.2~20 $\mu$ mであり、かつ平均繊維長が  
5 $\mu$ m~1mmである繊維状フィラー (e1)；  
平均粒子径が1~50 $\mu$ mであり、かつアスペクト比が  
20~40である扁平状微粒子 (e5)；  
平均粒子径が1~150 $\mu$ mであり、かつアルミノシリ  
ケート化合物を主成分とする微粒子 (e6)；  
平均粒子径が5~150 $\mu$ mであり、かつ屈折率が1.  
47~1.51である中空の微粒子 (e9)。

【請求項2】 請求項1に記載の接着性テープの少なく  
とも一方の面に粘着剤層が積層されてなる粘着性テー  
プ。

【請求項3】 請求項1に記載のモノマー混合物100

重量部に対し、  
光重合開始剤 (d) 0.01~5 重量部、および  
平均粒子径が 5~150  $\mu\text{m}$  であるポリエチレン微粒子  
(e3) または平均粒子径が 10~150  $\mu\text{m}$  であり、  
かつ粒子表面が平滑であるか或いは粒子表面が疎水化処  
理された中実のガラス粒子を含有する光重合性組成物を  
シート状に塗工し、次いでそのシート状の光重合性組成  
物に光を照射することによって得られる接着性テープの  
少なくとも一方の面に、直接、粘着剤層が積層されてな  
る粘着性テープ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、光重合性組成物、それを用いた接着性テープ、およびこの接着性テープを基材としてなる粘着性テープに関し、さらに詳しくは、優れた接着強度を有し、構造体などの接合作業を簡便に行うことができる粘着性テープに関する。本発明はまた、透明性に優れた粘着性テープに関する。

【0002】なお、本発明の接着性テープは、その使用目的に応じてサイズを変更できるものであり、従って広幅に形成した接着性シートを含めるものとする。

【0003】

【従来の技術】従来より、ポリエチレン系発泡体、クロロプレン系発泡体、ウレタン系発泡体、アクリル系発泡体などを基材とし、その両面にアクリル系粘着剤層を設けたいわゆる両面発泡体テープが、無溶剤性からの作業の安全性、および接着力発現の早さなどの高作業効率の点から、自動車産業、電気電子産業、建築材料などの多くの分野で接着剤に代わり接合作業に用いられている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記両面発泡体テープでは、その発泡体基材の破壊強度が低いいため、剪断強度、剥離強度などの接着強度が、発泡体基材の凝集破壊強度で決定されてしまい、さらに高い破壊強度、すなわち高い接着強度が得られないという問題点があった。

【0005】本発明の目的は、上記問題を解決し、高い剪断強度および高い剥離強度を有する粘着性テープまたはシート、その基材となる接着性テープまたはシート、およびその接着性テープまたはシートを形成するために用いられる光重合性組成物を提供することにある。本発明の他の目的は、透明性に優れた粘着性テープを提供することにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】上記問題を解決するために本発明者らは鋭意検討した結果、特定のフィラーを配合した特定の光重合性組成物により、接着強度が向上することを見だし、本発明に至った。

【0007】本発明の光重合性組成物は、炭素数 1~12 のアルキル基を有する (メタ) アクリル酸エステルか

ら選択される 1 種以上の (メタ) アクリル酸エステルモノマー (a) 50~98 重量%、極性基を有し、かつ該 (メタ) アクリル酸エステルモノマー (a) と共重合可能なモノマーから選択される 1 種以上のモノマー (b) 50~2 重量%、および該 (メタ) アクリル酸エステルモノマー (a) および該モノマー (b) と共重合可能であり、かつ分子内に不飽和二重結合を 2 個以上有するモノマー (c) 0.01~1 重量%、を含有するモノマー混合物 100 重量部に対し、光重合開始剤 (d) 0.01~5 重量部、および以下の (e1)~(e9) からなる群より選択される少なくとも一種のフィラーを含有する：平均直径が 0.2~20  $\mu\text{m}$  であり、かつ平均繊維長が 5  $\mu\text{m}$ ~1 mm である繊維状フィラー (e1)；平均粒子径が 0.5~150  $\mu\text{m}$  である多孔質微粒子 (e2)；平均粒子径が 5~150  $\mu\text{m}$  である非極性樹脂微粒子 (e3)；平均粒子径が 5~100  $\mu\text{m}$  であり、かつガラス転移温度が 90℃ 以上である有機微粒子 (e4)；平均粒子径が 1~50  $\mu\text{m}$  であり、かつアスペクト比が 20~40 である扁平状微粒子 (e5)；平均粒子径が 1~150  $\mu\text{m}$  であり、かつアルミノシリケート化合物を主成分とする微粒子 (e6)；平均粒子径が 10~150  $\mu\text{m}$  であり、かつ粒子表面が平滑であるシリカ系微粒子 (e7)；平均粒子径が 10~150  $\mu\text{m}$  であり、かつ粒子表面が疎水化処理されたシリカ系微粒子 (e8)；および平均粒子径が 5~150  $\mu\text{m}$  であり、かつ屈折率が 1.47~1.51 である微粒子 (e9)。

【0008】本発明の接着性テープは、上記光重合性組成物をシート状に塗工し、次いでその塗工面を光照射することによって得られる。

【0009】本発明の粘着性テープは、上記接着性テープの少なくとも一方の面に接着剤層を積層してなる。

【0010】以下に、本発明について詳しく説明する。

【0011】本発明の光重合性組成物の主成分として用いられる (メタ) アクリル酸エステルモノマー (a) としては、炭素数 1~12 のアルキル基を有する (メタ) アクリル酸エステル、好ましくは炭素数 4~12 のアルキル基を有する (メタ) アクリル酸エステルが挙げられ、具体的には、n-ブチル (メタ) アクリレート、2-エチルヘキシル (メタ) アクリレート、イソオクチル (メタ) アクリレート、n-オクチル (メタ) アクリレート、イソノニル (メタ) アクリレート、ラウリル (メタ) アクリレートなどを挙げるができる。これらは、単独で、または 2 種以上を組み合わせ用いることができる。得られる光重合性組成物の粘着性と凝集性とのバランスなどから、通常ホモポリマーのガラス転移温度 ( $T_g$ ) が -50℃ 以下の (メタ) アクリル酸エステルを主成分とし、それにメチル (メタ) アクリレート、エチル (メタ) アクリレートなどの低級アルキル基を有する (メタ) アクリル酸エステルを組み合わせ用いら

れる。

【0012】上記(メタ)アクリル酸エステルモノマー(a)は、モノマー混合物中に、50～98重量%の範囲の割合で含有され、好ましくは70～90重量%の範囲で含有される。モノマー混合物中の(メタ)アクリル酸エステルモノマー(a)の含有量が、50重量%未満の場合には、得られるモノマー混合物の凝集力が高くなり過ぎ、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの接着強度が不十分となり、98重量%を超える場合には、得られるモノマー混合物の凝集力が低くなり過ぎ、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。

【0013】本発明に用いられるモノマー(b)は、極性基を有し、上記(メタ)アクリル酸エステルモノマー(a)と共重合可能である。このようなモノマー(b)としては、(メタ)アクリル酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸などのカルボキシル基含有モノマーまたはその無水物；(メタ)アクリロニトリル、N-ビニルピロリドン、N-ビニルカプロラクタム、アクリロイルモルホリン、(メタ)アクリルアミド、ジメチルアミノエチル(メタ)アクリレート、ジエチルアミノエチル(メタ)アクリレート、ジメチルアミノプロピルアクリルアミドなどの窒素含有モノマー；2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピルメタクリレート、2-ヒドロキシブチルアクリレートなどの水酸基含有モノマーなどが好適に使用される。

【0014】上記モノマー(b)は、モノマー混合物中に、2～50重量%の範囲の割合で含有され、好ましくは10～30重量%の範囲の割合で含有される。モノマー混合物中のモノマー(b)の含有量が、2重量%未満の場合には、得られるモノマー混合物の凝集力が高くなり過ぎ、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となり、50重量%を超える場合には、得られるモノマー混合物の凝集力が低くなり過ぎ、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの接着強度が不十分となる。

【0015】本発明に用いられるモノマー(c)は、上記(メタ)アクリル酸エステルモノマー(a)および上記モノマー(b)と共重合可能である。このようなモノマー(c)としては、ヘキサジオールジ(メタ)アクリレート、(ポリ)エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、(ポリ)プロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、ネオペンチルグリコールジ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールジ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールトリ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリメタクリレート、アリル(メタ)アクリレート、ビニル(メタ)アクリレート、ジビニルベンゼン、エポキシアクリレート、ポリエステ

ルアクリレート、ウレタンアクリレートなどが好適に使用される。

【0016】上記モノマー(c)は、モノマー混合物中に、0.01～1重量%の範囲の割合で含有される。ヘキサジオールジアクリレートやジビニルベンゼンのような低分子量モノマーを用いる場合には、モノマー混合物中に0.02～0.08重量%の範囲で含有されることが好ましく、ポリプロピレングリコールジアクリレートやウレタンアクリレートのような高分子量モノマーを用いる場合には、モノマー混合物中に0.2～0.8重量%の範囲で含有されることが好ましい。モノマー混合物中のモノマー(c)の含有量が、0.01重量%未満の場合には、凝集力が不足し、かつ耐クリープ性が低下し、1重量%を超える場合には、凝集力が高すぎ、かつ剥離強度が低下する。

【0017】本発明に用いられる光重合開始剤(d)としては、例えば、4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル(2-ヒドロキシ-2-プロピル)ケトン〔ダロキュア2959：チバガイギー社製〕などのケトン系； $\alpha$ -ヒドロキシ- $\alpha$ 、 $\alpha'$ -ジメチル-アセトフェノン〔ダロキュア1173：チバガイギー社製〕、メトキシアセトフェノン、2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン〔イルガキュア651：チバガイギー社製〕、2-ヒドロキシ-2-シクロヘキシルアセトフェノン〔イルガキュア184：チバガイギー社製〕などのアセトフェノン系；ベンジルジメチルケタールなどのケタール系；その他、ハロゲン化ケトン、アシルホスフィノキシド、アシルホスフォナートなどを挙げることができる。

【0018】上記光重合開始剤(d)の含有量は、モノマー混合物100重量部に対して0.01～5重量部であり、好ましくは0.05～3重量部である。光重合開始剤(d)の含有量が、モノマー混合物100重量部に対して0.01重量部未満の場合には、重合反応が進行しにくい、十分な転化率が得られず、5重量部を超える場合には、ラジカル発生量が多くなりすぎ、低分子量の共重合体しか得られない。

【0019】本発明に用いられるフィラーとしては、上記のように繊維状フィラー(e1)、多孔質微粒子(e2)、非極性樹脂微粒子(e3)、有機微粒子(e4)、扁平状微粒子(e5)、微粒子(e6)、シリカ系微粒子(e7)、シリカ系微粒子(e8)および微粒子(e9)が挙げられる。

【0020】本発明に用いられる繊維状フィラー(e1)としては、ガラス繊維、セピオライト系繊維、クリソタイル系繊維、ウオラストナイト、PMF(Processed Mineral Fiber)、ゾノライト、チタン酸カリなどがあげられるが、安全環境上の問題から、クリソタイルなどのアスベスト系繊維は避けるべきである。本発明の光重合性組成物には、上記繊維

状フィラーのうち、平均直径が $0.2 \sim 20 \mu\text{m}$ であり、かつ平均繊維長が $5 \mu\text{m} \sim 1 \text{mm}$ のフィラーが用いられる。上記繊維状フィラーの平均直径が $0.2 \mu\text{m}$ 未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となり、 $20 \mu\text{m}$ を超える場合には、平滑な表面を有する接着性テープまたは粘着性テープが得られない。繊維状フィラーの平均繊維長が $5 \mu\text{m}$ 未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となり、 $1 \text{mm}$ を超える場合には、平滑な表面を有する接着性テープまたは粘着性テープが得られない。

【0021】上記繊維状フィラー(e1)の含有量は、モノマー混合物100重量部に対して $0.5 \sim 20$ 重量部であることが好ましく、さらに好ましくは $2 \sim 15$ 重量部である。繊維状フィラー(e1)の含有量が、モノマー混合物100重量部に対して $0.5$ 重量部未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となり、 $20$ 重量部を超える場合には、得られる光重合性組成物の粘度が著しく高くなり、平滑な表面を有する接着性テープまたは粘着性テープが得られない。

【0022】本発明に用いられる多孔質微粒子(e2)としては、ケイソウ土などの天然無機微粒子、シリカゲルなどの合成無機微粒子、多孔質処理をした有機微粒子などがある。本発明の光重合性組成物には、上記多孔質微粒子のうち、平均粒子径が $0.5 \sim 150 \mu\text{m}$ の微粒子が用いられる。上記多孔質微粒子の平均粒子径が $0.5 \mu\text{m}$ 未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剥離強度が不十分となり、 $150 \mu\text{m}$ を超える場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。

【0023】上記多孔質微粒子(e2)の含有量は、モノマー混合物100重量部に対して $0.5 \sim 20$ 重量部であることが好ましく、さらに好ましくは $2 \sim 15$ 重量部である。多孔質微粒子(e2)の含有量が、モノマー混合物100重量部に対して $0.5$ 重量部未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの接着強度が不十分となり、 $20$ 重量部を超える場合には、得られる光重合性組成物の粘度が著しく高くなり、平滑な表面を有する接着性テープおよび粘着性テープが得られない。

【0024】本発明に用いられる非極性樹脂微粒子(e3)としては、低密度ポリエチレン(LDPE)、直鎖状低密度ポリエチレン(L-LDPE)、高密度ポリエチレン(HDPE)などのポリエチレン微粒子；ポリプロピレン微粒子；ジメチルシリコンなどのシリコン微粒子などが挙げられる。本発明の光重合性組成物には、上記非極性樹脂微粒子のうち、平均粒子径が $5 \sim 1$

$50 \mu\text{m}$ の微粒子が用いられる。上記非極性樹脂微粒子の平均粒子径が $5 \mu\text{m}$ 未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剥離強度が不十分となり、 $150 \mu\text{m}$ を超える場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。

【0025】上記非極性樹脂微粒子(e3)の含有量は、モノマー混合物100重量部に対して $8 \sim 70$ 重量部であることが好ましく、さらに好ましくは $10 \sim 60$ 重量部である。非極性樹脂微粒子(e3)の含有量が、モノマー混合物100重量部に対して $8$ 重量部未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの接着強度が不十分となり、 $70$ 重量部を超える場合には、得られる光重合性組成物の光透過率が低くなり、重合反応速度が著しく低下する。

【0026】本発明に用いられる有機微粒子(e4)としては、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレンなど、またはそれらを主成分とする共重合体が挙げられ、その共重合体は架橋されていることが好ましい。上記有機微粒子はまた、フェノール樹脂、グアナミン樹脂などの熱硬化性樹脂であってもよい。本発明の光重合性組成物には、上記有機微粒子のうち、平均粒子径が $5 \sim 100 \mu\text{m}$ であり、かつガラス転移温度が $90^\circ\text{C}$ 以上である微粒子が用いられる。上記有機微粒子の平均粒子径が $5 \mu\text{m}$ 未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剥離強度が不十分となり、 $100 \mu\text{m}$ を超える場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。また、上記有機微粒子のガラス転移温度が $90^\circ\text{C}$ 未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの高温での接着強度が不十分となる。

【0027】上記有機微粒子(e4)の含有量は、モノマー混合物100重量部に対して $5 \sim 50$ 重量部であることが好ましく、さらに好ましくは $10 \sim 40$ 重量部である。有機微粒子(e4)の含有量が、モノマー混合物100重量部に対して $5$ 重量部未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの接着強度が不十分となり、 $50$ 重量部を超える場合には、得られる光重合性組成物の粘度が著しく高くなり、平滑な表面を有する接着性テープおよび粘着性テープを得ることができない。

【0028】本発明に用いられる扁平状微粒子(e5)としては、例えば、微粉カリ・フッ素雲母、微粉ナトリウム・フッ素雲母などの合成雲母などが挙げられる。マスコパイト、フロゴパイトのようなケイ酸アルミニウム系化合物であって、通常マイカとよばれる化合物を用いることもできるが、マイカは着色の度合いが強く、光の透

過を阻害するため、光照射により重合を行う場合には好ましくない。すなわち、本発明においては、光透過性の高い合成雲母を用いることが好ましい。本発明の光重合性組成物には、上記偏平状微粒子のうち、平均粒子径が1~50 $\mu$ mであり、かつアスペクト比が20~40である微粒子が用いられる。上記偏平状微粒子の平均粒子径が1 $\mu$ m未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剥離強度が不十分となり、50 $\mu$ mを超える場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。上記偏平状微粒子のアスペクト比が20未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となり、40を超える場合には、平滑な表面を有する接着性テープおよび粘着性テープを得ることができない。

【0029】上記偏平状微粒子(e5)の含有量は、モノマー混合物100重量部に対して1~20重量部であることが好ましく、さらに好ましくは3~15重量部である。上記偏平状微粒子(e5)の含有量が、モノマー混合物100重量部に対して1重量部未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの接着強度が不十分となり、20重量部を超える場合には、得られる光重合性組成物の粘度が著しく高くなり、平滑な表面を有する接着性テープおよび粘着性テープを得ることができない。

【0030】本発明に用いられるアルミノシリケート化合物を主成分とする微粒子(e6)としては、例えば、アルミナとケイ酸塩とから合成されるものや、発電所などから排出されるフライアッシュなどがある。上記微粒子(e6)は中空微粒子であってもよく、このような中空微粒子としては、シラスバルーン、フライアッシュバルーンなどがある。シラスバルーンは、九州に大量に存在するシラス土壌(火山灰)を焼成発泡させたものであり、市販品としては、イチジ化成社製のウインライト(商品名)、昭和化学工業社製のスーパーバルーン(商品名)などがある。フライアッシュバルーンは、主に発電所から排出される軽質灰であり、市販品としては、英国フィライト社製のフィライド(商品名)、小野田セメント社製のマイクロセルズ(商品名)、PQコーポレーション製のエクステンドスフェア(商品名)などがある。

【0031】本発明の光重合性組成物には、上記微粒子のうち平均粒子径が1~150 $\mu$ mである微粒子が用いられる。上記微粒子の平均粒子径が1 $\mu$ m未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剥離強度が不十分となり、150 $\mu$ mを超える場合には得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。

【0032】上記微粒子(e6)の含有量は、モノマー混合物100重量部に対して1~40重量部であることが好ましく、さらに好ましくは3~30重量部である。上記微粒子(e6)の含有量が、モノマー混合物100重量部に対して1重量部未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの接着強度が不十分となり、40重量部を超える場合には、得られる光重合性組成物の光透過率が低くなり、重合反応が著しく遅くなる。

【0033】本発明に用いられるシリカ系微粒子(e7)としては、アルカリガラス、ホウケイ酸系ガラスのようにSiO<sub>2</sub>を約50~約70重量%含有するガラス類；SiO<sub>2</sub>を98重量%以上含有するシリカ類；Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とSiO<sub>2</sub>とを主成分とするアルミノシリケート類などを原料とする微粒子およびそれらの微粒子の表面に疎水化処理を施した微粒子が挙げられる。本発明の光重合性組成物には、上記微粒子のうち、平均粒子径が10~150 $\mu$ mであり、かつ表面が平滑である微粒子が用いられる。上記微粒子の10 $\mu$ m未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剥離強度が不十分となり、150 $\mu$ mを超える場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。また、該シリカ系微粒子の表面が平滑であることにより、光重合性組成物中に含まれるシリカ系微粒子とモノマー混合物との接触面積が小さくなり、得られる光重合性組成物の粘度が上昇しにくい。そのため接着性テープまたは粘着性テープを製造する際の光重合性組成物の塗工を容易に行うことができる。

【0034】上記シリカ系微粒子(e7)の含有量は、モノマー混合物100重量部に対して50~175重量部であることが好ましく、さらに好ましくは70~150重量部である。上記シリカ系微粒子(e7)の含有量が、モノマー混合物100重量部に対して50重量部未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剥離強度が不十分となり、175重量部を超える場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。

【0035】本発明に用いられる、粒子表面が疎水化処理されたシリカ系微粒子(e8)としては、アルカリガラス、ホウケイ酸系ガラスなどのガラス類；SiO<sub>2</sub>を98重量%以上含有するような石英、シリカゲルなど；ガラスバルーン；シラスバルーンなどがある。疎水化処理を行うには、ポリジメチルシロキサン、トリメトキシオクチルシラン、ヘキサメチルシラザン、トリメトキシステアシルシランなどのシランカップリング剤を用いることが好ましい。このように微粒子表面を疎水化処理することにより、この微粒子(e8)と微粒子を取り巻くアクリル系重合体との界面接着力が向上するため、この



光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープは、接着強度に優れている。

【0036】本発明の光重合性組成物には、上記微粒子のうち、平均粒子径が $10 \sim 150 \mu\text{m}$ である微粒子が用いられる。上記微粒子の $10 \mu\text{m}$ 未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剥離強度が不十分となり、 $150 \mu\text{m}$ を超える場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。

【0037】上記シリカ系微粒子(e8)は、得られる光重合性組成物の全体積中の $15 \sim 50$ 体積%を占める割合となるように含有されることが好ましい。上記シリカ系微粒子(e8)の含有量が、得られる光重合性組成物の全体積中の $10$ 体積%を占める割合未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剥離強度が不十分となり、 $50$ 体積%を占める割合を超える場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。微粒子(e8)のうち、中空構造を有しない微粒子の比重は約 $2.1$ である。微粒子(e8)として中空微粒子を用いる場合には、比重が $0.15 \sim 1.1$ の微粒子が好適に使用される。従って、上記シリカ系微粒子(e8)の含有量を重量部に換算すると、モノマー混合物 $100$ 重量部に対して $2 \sim 175$ 重量部であることが好ましく、さらに好ましくは $3 \sim 150$ 重量部である。

【0038】本発明に用いられる微粒子(e9)としては、ポリメチルメタクリレート、ポリエチルアクリレート、ポリブチルメタクリレート、ウレタンエラストマーなどの有機微粒子；シリカ微粒子などが挙げられる。有機微粒子を用いる場合には、耐熱性を向上させるために、有機微粒子を構成するポリマーは架橋されていることが好ましい。本発明の光重合性組成物には、上記微粒子のうち、平均粒子径が $5 \sim 150 \mu\text{m}$ であり、かつ屈折率が $1.47 \sim 1.51$ である微粒子が用いられる。上記微粒子の平均粒子径が $5 \mu\text{m}$ 未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剥離強度が不十分となり、 $150 \mu\text{m}$ を超える場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの剪断強度が不十分となる。上記微粒子の屈折率が $1.47 \sim 1.51$ の範囲外の場合には、この微粒子(e9)を含有する光重合性組成物を用いて得られる接着性テープの透明性が不十分となる。上記微粒子(e9)が中空微粒子であることは好ましくない。なぜならば、中空微粒子の殻の屈折率が $1.47 \sim 1.51$ の範囲内であっても、該殻と内部との界面で反射してしまい、透明性が失われるためである。

【0039】上記微粒子(e9)は、得られる光重合性

組成物の全体積中の $15 \sim 50$ 体積%を占める割合となるように含有されることが好ましく、さらに好ましくは $20 \sim 40$ 体積%を占める割合となるように含有される。上記微粒子(e9)の含有量が、得られる光重合性組成物の全体積中の $15$ 体積%を占める割合未満の場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの接着強度が不十分となり、 $50$ 体積%を占める割合を超える場合には、得られる光重合性組成物を用いて得られる接着性テープおよび粘着性テープの透明性が不十分となる。

【0040】本発明の光重合性組成物は、上記(メタ)アクリル酸エステルモノマー(a)、モノマー(b)、モノマー(c)、光重合開始剤(d)、および上記フィラー(e1)～(e9)のいずれか一種を、常法に従って、均一に攪拌しながら混合することにより、得ることができる。

【0041】本発明の光重合性組成物には、耐熱性を向上するために、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、イソボルニル(メタ)アクリレートなどの $0^\circ\text{C}$ 以上の $T_g$ を有するモノマーを必要に応じて配合してもよい。本発明の光重合性組成物にはまた、粘着付与樹脂(TF)を配合することもできる。好適なTFとしては、ロジン系樹脂、変性ロジン系樹脂、テルペン系樹脂、テルペンフェノール系樹脂、C5およびC9系石油樹脂、クマロン樹脂など、およびこれらの水添物などが挙げられ、これらは単独または2種以上を組み合わせて使用することができる。ただし、上記 $0^\circ\text{C}$ 以上の $T_g$ を有するモノマーおよび/または上記TFを光重合性組成物に配合して重合する場合には、重合速度が低下したり、分子量が低下したりする場合があるので、このような場合には、連鎖移動剤や上記モノマー(c)の配合量を適宜調整することが好ましい。

【0042】上記連鎖移動剤は、共重合体の分子量を調節するために用いられ、例えば、n-ドデシルメルカプタン(ドデカンチオールともいう)、t-ドデシルメルカプタンなどが挙げられる。これらの連鎖移動剤は、モノマー混合物 $100$ 重量部に対し、 $0.01 \sim 0.1$ 重量部の範囲で用いられ得る。

【0043】本発明の接着性テープを製造するには、まず、得られる接着性テープの表面が平滑になるように、配合されているフィラーが均一分散されるように光重合組成物を十分に攪拌増粘し、チキソ性を付与する。この光重合性組成物を離型処理した紙またはポリエチレンテレフタレート(PET)フィルム上に所定の厚みになるように塗工し、次いでその塗工面を光照射することにより接着性テープを得ることができる。

【0044】本発明の接着性テープは、 $50 \mu\text{m} \sim 5\text{mm}$ の範囲の厚みに形成することができる。厚みが $100 \mu\text{m}$ 以下の接着性テープを製造する場合には、粘度が $1000\text{cps}$ 程度であり、チキソトロピー性を示すチキ

ソトロピックインデックス (TI) 値が 1.5 程度の光重合性組成物を用いて塗工することができるが、厚みが 100  $\mu\text{m}$  を超えるテープを製造する場合には、上記光重合性組成物をさらに高粘度にすることが好ましい。

【0045】光重合性組成物を高粘度にする手段としては、アクリルゴム、ニトリルゴム、スチレン-イソプレネースチレンブロック (SIS) などのジブロックまたはトリブロックゴムなどのエラストマー；ポリメチルメタクリレート (PMMA)、ポリスチレン (PS) などの熱可塑性プラスチックなどを溶解してもよいし、平均粒子径が 5  $\mu\text{m}$  以下のシリカ粒子、アルミナ粒子などを上記光重合性組成物に混合してもよい。上記添加物のうち無機物を添加する場合には、より早く一次粒子まで分散することができるという点から、表面が疎水化処理を施されている粒子を用いることが好ましい。高粘度にするための他の方法としては、上記のような添加物を加えず、組成物の一部を予め部分重合する方法がある。この部分重合は、モノマー (c) を添加する以前に行い、ミクロゲル生成を防ぐべきである。部分的にミクロゲルが生成した場合には、塗工時に、スジなどの発生の原因となる。部分重合されるモノマーは、全モノマーの 1.5 重量%~60 重量%にすべきである。部分重合されるモノマーが 1.5 重量%未満の場合には、必要な粘度を得ることができず、60 重量%を超える場合には、得られる光重合性組成物の粘度が高くなりすぎて塗工できなくなる。

【0046】上記のようにして基材上に塗工した光重合性組成物に光を照射するには、以下に示す条件を用いて行われる。

【0047】光照射には、光波長 400 nm 以下に発光分布を有するランプ類が用いられる。このようなランプ類としては、低圧水銀灯、中圧水銀灯、高圧水銀灯、超高圧水銀灯、ケミカルランプ、ブラックライトランプ、マイクロウエーブ励起水銀灯、メタルハライドランプなどが挙げられる。この中でも、ケミカルランプは、開始剤の活性波長領域の光を効率よく発光し、開始剤以外の組成物はこの波長領域の光をあまり吸収しないため、光重合性組成物の内部まで光が透過し、高厚膜のシートを製造するのに好ましい。上記ランプの光照射強度は、得られるポリマーの重合度を左右する因子であり、目的製品の性能ごとに適宜制御される。例えば、通常用いられるアセトフェノン基を有する開裂型の開始剤を配合した場合には、その開始剤の光分解に有効な波長領域 (開始剤によって異なるが、通常、365 nm~420 nm の光が用いられる) の光が照射され、その光照射強度は、0.1~100 mW/cm<sup>2</sup> の範囲であることが好ましい。

【0048】本発明における光重合は、空気中の酸素および光重合性組成物に溶解している酸素によって反応が阻害される。このため、光照射は、酸素の阻害されない

ような手法を用いて実施されなければならない。このような手法としては、表面を離型処理したポリエチレンテレフタレート (PET) やテフロンなどのフィルムで、塗工された光重合性組成物を覆い、このフィルムを介して該組成物へ光を照射する方法がある。あるいは、窒素ガス、炭酸ガスなどのような不活性なガスで酸素を置換したイナートゾーンの中で光透過性の窓を介して外部より光照射して反応させる方法もある。イナートゾーンの中で反応させる方法においては、該組成物の重合転化率が 99.7% 以上となるまで十分に光重合が完結されるためには、この照射雰囲気中の酸素濃度は 5000 ppm 以下であることが好ましく、より好ましくは 300 ppm 以下である。

【0049】急速に光重合反応が進行する場合には、重合熱により、塗工される離型処理フィルムや、カバー用離型処理フィルムが加熱伸縮され、得られるシートにスジなどが発生する場合がある。このようなスジの発生は、光カットフィルターによりランプからの輻射熱を抑制したり、照射面の反対側の背面を冷却板と接触させることにより冷却することで防ぐことができる。

【0050】本発明の接着性テープは、上記のように本発明の光重合性組成物を光重合により硬化させることにより得られる。この光重合によって得られる架橋体のガラス転移温度 (Tg) が 50℃ 以下である場合には、この架橋体からなる接着性テープは、接合作業時にドライヤーなどでわずかに加熱するだけで接着力を発現する感熱型の接着性テープとなる。光重合によって得られる架橋体の Tg が 20℃ 以下である場合には、常温で粘着性のあるテープが得られる。雰囲気温度が 0℃ 以下となるような冬場の現場作業性を重視する場合には、Tg を 5℃ 以下となるように設定すべきである。接着性テープの接着強度は、重合によって得られる架橋体の Tg によらず、本発明のようにフィラーを配合することにより向上することができる。

【0051】本発明の粘着性テープは、上記接着性テープの片面または両面に、さらに粘着剤層を積層することにより作成することができる。新たに積層される粘着剤層を構成する粘着剤としては、アクリル系、ゴム系、シリコン系などの粘着剤を使用することができ、それらの粘着剤は溶剤型、水分散型、ホットメルト型のいずれのタイプであってもかまわない。表面に光重合性組成物を塗布して光照射を行うことにより積層してもよい (以下、光重合型という)。用いる粘着剤が、ホットメルト型または光重合型の場合には、基材となる上記接着性テープ上に直接塗工し、積層することができる。用いる粘着剤が、溶剤型または水分散型の場合には、離型処理を施したフィルム上に該粘着剤を塗工し、乾燥して粘着剤層を作成し、その後、基材となる上記接着性テープ上に、該粘着剤層を積層する方法が用いられる。基材となる上記接着性テープ上に直接、溶剤型または水分散型の



粘着剤を塗工すると、溶剤や水分が接着性テープ中に拡散し、それを乾燥するために長時間を要する場合がある。

【0052】上記粘着剤の組成および配合は、被着体に応じて変更すべきである。例えば、被着体がポリエチレンや、ポリプロピレンのようなポリオレフィン系の場合には、粘着付与樹脂を20～35重量%配合したアクリル系粘着剤または天然ゴム系粘着剤を用いることが好ましい。被着体が軟質塩化ビニル樹脂の場合には、極性成分として、N-ビニルピロリドン、N-ビニルカプロラクタム、アクリロイルモルホリンなどを含有し、(メタ)アクリル酸などのカルボキシル基を含有しないアクリル系粘着剤組成物を使用すると、熱老化性に優れた粘着性テープを得ることができる。

【0053】

【作用】接着性テープの製造に用いられる光重合性組成物に、各種フィラーを配合することにより、得られる接着性テープの物性が向上する。例えば、繊維状フィラー(e1)、非極性樹脂微粒子(e3)、有機微粒子(e4)、扁平状微粒子(e5)、シリカ系微粒子(e7)、および微粒子(e9)を配合することにより、得られる接着性テープの接着強度が向上する。接着強度が向上する理由は必ずしも明らかではないが、特定組成のアクリル系架橋体中に、特定の微粒子を配合することにより弾性率が上昇し、剪断強度が向上することが推定される。

【0054】接着性テープの製造に用いられる光重合性組成物に、繊維状フィラー(e1)；多孔質表面を有する微粒子(例えば、多孔質粒子(e2))；シラノール基などの極性基を表面に有する微粒子(例えば、アルミノシリケート化合物を主成分とする微粒子(e6))；または、表面が疎水化処理された微粒子(例えば、シリカ系微粒子(e8))をフィラーとして配合する場合には、フィラーの体積あたりの表面積が比較的大きく、接着面積が増大するため、より少量のフィラーで接着強度の優れた接着性テープを得ることができると考えられる。

【0055】微粒子(e9)を配合する光重合性組成物を用いて製造された接着性テープに、アクリル系粘着剤層を積層して粘着性テープを製造した場合には、この微粒子(e9)の屈折率(1.47～1.51の範囲)が、アクリル系粘着剤の屈折率に近い場合、得られる粘着性テープは透明性に優れている。

【0056】

【実施例】以下に、実施例を用いて本発明を詳しく説明する。

【0057】(実施例1)冷却管、温度計、および攪拌器を備えたセパラブルフラスコに、2-エチルヘキシルアクリレート900g、アクリル酸100g、イルガキュア184(商品名)(チバガイギー社製)0.3g、

およびセビオライト(フィラーとして用いた)(水沢化学工業社製、商品名:エードプラスSP(平均直径:0.2μm、平均繊維長:7.5μm))100gを仕込み、均一に分散するまで、攪拌混合した後、窒素ガスをパージすることにより、溶存酸素を除去した。そしてこの組成物にブラックライトランプを用いて紫外線を照射したところ、組成物の温度が上昇すると同時に粘度が高くなった。組成物の温度が5℃上昇したところで、光照射をやめた(この組成物を部分光重合増粘組成物という)。得られた部分光重合増粘組成物の転化率は4.1%、そして粘度は2300cpsであった。

【0058】さらにこの部分光重合増粘組成物にヘキサジオールジアクリレート0.5gを配合し、図1に示すように、離型処理した38μmの厚みのポリエチレンテレフタレートフィルム(PETフィルム)1上に、重合終了時の厚みが1.0±0.1mmとなるようにこの組成物を塗工し、さらに同じPETフィルム1'を用いて、その離型処理面が塗工面に接するように塗工面をカバーした。

【0059】次いで、ケミカルランプを用いてこのカバーに用いたPETフィルム1'上の照射強度が2mW/cm<sup>2</sup>となるようにランプ高さを調整し、8分間照射して接着性シート2aを得た。そのときの接着性シート2aの残存モノマーは0.1%であり、ゲル分率は86%であった。得られた接着性シート2aを用いて、以下の方法により剪断強度およびT剥離強度を測定した。これらの測定を行う場合には、カバーに用いたPETフィルム1、1'を除去して、接着性シート2aのみを用いた。

【0060】<剪断強度>図2に示すように、幅20mm×長さ20mmの上記接着性シート2aの粘着面を、プライマー表面処理したポリカーボネート板3(幅25mm×長さ10mm×厚み2mm)に貼り合わせ、24時間室温にて放置した。このようにして試験片を得、この試験片を用いて剪断強度を測定した。引っ張り速度は、50mm/分で行った。

【0061】<T剥離強度>図3に示すように、幅20mm×長さ70mmの上記接着性シート2aの両面に、プライマー表面処理した厚み300μmのアルミ箔4を貼り付け、24時間室温にて放置した。このようにして試験片を得、この試験片を用いてT剥離強度を測定した。引っ張り速度は、200mm/分で行った。

【0062】(実施例2)イソノニルアクリレート950g、アクリル酸10g、N-ビニルピロリドン40g、および親水性シリカ(日本アエロジル社製、商品名:アエロジル200)40gをデイスパーで4時間にわたって1000rpmで攪拌混合し、粘稠な液体を得た。これに、ガラス繊維(フィラーとして用いた)(旭ファイバーグラス社製、商品名:ミルドファイバーB(平均直径:10μm、平均繊維長:65μm))10

0 g、イルガキュア 184 を 0.3 g、およびビニルメタクリレート 0.25 g を加え、均一になるまで攪拌混合した後、窒素ガスをパージし、溶存する酸素を除去した。以下、得られた組成物を用いて実施例 1 と同様にして厚み約 1 mm の接着性シートを得た。得られた接着性シートを用いて実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0063】（実施例 3）2-エチルヘキシルアクリレート 700 g、イソオクチルアクリレート 200 g、アクリル酸 100 g、および疎水性シリカ（日本アエロジル社製、商品名：アエロジル R976）70 g を、デイスパーで 1000 rpm で 30 分間攪拌混合し、粘稠な液体を得た。これに表面を疎水化処理したガラス繊維（フィラーとして用いた）（旭ファイバーグラス社製、商品名：ミルドファイバー T10（平均直径：13 μm、平均繊維長：200 μm））100 g、アリルアクリレート 0.3 g、およびイルガキュア 651（商品名）（チバガイギー社製）0.3 g を加え、均一になるまで攪拌混合した後、窒素ガスをパージし、溶存する酸素を除去した。以下、得られた組成物を用いて実施例 1 と同様にして厚み約 1 mm の接着性シートを得た。得られた接着性シートを用いて実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0064】（比較例 1）繊維状フィラー含有させなかったこと以外は実施例 1 と同様にして光重合性組成物を得た。このようにして得られた組成物の転化率は 5.1 % であり、そして粘度は 4100 cps であった。この組成物を用いて実施例 1 と同様にして接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0065】（比較例 2）冷却管、温度計、および攪拌器を備えたセパラブルフラスコに、2-エチルヘキシルアクリレート 200 g、n-ブチルアクリレート 700 g、N-ビニルピロリドン 100 g、2-ヒドロキシエチルメタクリレート 2 g、n-ドデカンチオール 2 g、および酢酸エチル 900 g を仕込み、窒素ガス雰囲気下で、還流するまで昇温し、20 分間保持した後、ベンジルペルオキシド 1 g を酢酸エチル 100 g に溶解した溶液を滴下し、4 時間反応させた。その後、ベンジルペルオキシド 1 g を酢酸エチル 100 g に溶解した溶液を滴下し、さらに 3 時間反応させた。次いで、トルエン 400 g を攪拌混合して、粘度 12000 cps の粘着剤溶液（A）を得た。固形分は 39.5 重量% であった。

【0066】この粘着剤溶液（A）100 g に、ガラス繊維（フィラーとして用いた）（旭ファイバーグラス社製、商品名：ミルドファイバー B）3.95 g、およびイソシアネート系硬化剤（日本ポリウレタン社製、商品名：コロネート L55E）4 g を混合したが、ガラス繊維が、凝集沈降してしまい、粘着剤シートは得られなかった。

【0067】（比較例 3）表面を疎水化処理したガラス繊維（フィラーとして用いた）（旭ファイバーグラス社製、商品名：ミルドファイバー T10）3.95 g をトルエン 10 g に加え、攪拌分散させ、次いで比較例 2 で得られた粘着剤溶液（A）100 g を加えて混合した。次いで、イソシアネート系硬化剤（日本ポリウレタン社製、商品名：コロネート L55E）4.0 g を加えて混合したところ、均質な分散液を得た。離型処理した 38 μm 厚みの PET フィルム上に乾燥後の厚みが 100 μm になるようにこの分散液を塗工し、110 °C で 5 分間乾燥して、粘着剤シートを得た。この粘着剤シートの粘着面には、粒状に凝集したガラス繊維が点在し、表面の粘着性はなかった。

【0068】（実施例 4）比較例 2 での粘着剤溶液

（A）にイソシアネート系硬化剤（日本ポリウレタン社製、商品名：コロネート L55E）を 4.0 g 加え、十分混合した後、脱泡し、離型処理した PET フィルム 1 上に塗工し、厚み 40 μm の粘着剤層を形成した。その後、ただちに実施例 1 で得られた接着性シートの一方向の接着面に、得られた粘着剤層面が接触するようにホットラミネートし、図 4 で示されるような粘着性シートを得た。その後、PET フィルム 1、1' を除去し、以下のようにして剪断強度を測定した。

【0069】＜剪断強度＞図 5 に示すように、軟質塩化ビニル樹脂板 6（ショア D 硬度 50、幅 25 mm × 長さ 100 mm × 厚み 5 mm）に、実施例 4 で得られた幅 20 mm × 長さ 20 mm の粘着性シートの粘着剤層 5a 側の面を貼付し、接着性シート 2 側の面を、プライマー処理したポリカーボネート板 3（幅 25 mm × 長さ 100 mm × 厚み 2 mm）に貼り合わせて 80 °C で 1 週間にあたって熱老化させた。このようにして試験片を得、この試験片を用いて剪断強度を測定した。引っ張り速度は、50 mm/分で行った。

【0070】（比較例 4）実施例 1 で得られた接着性シートの代わりに、比較例 1 で得られた接着性シートを用い、粘着剤層を積層しなかったこと以外は、実施例 4 と同様にしてシートを得、実施例 4 と同様にして剪断強度を測定した。すなわち、図 6 に示すように、比較例 1 で得られた接着性シート 2b の一方の粘着面に、軟質塩化ビニル樹脂 6 をラミネートし、接着性シート 2b の他方の粘着面に、ポリカーボネート板 3 を貼り合わせて試験片を得た。

【0071】（比較例 5）実施例 1 で得られた接着性シートの代わりに、比較例 1 で得られた接着性シートを用いたこと以外は、実施例 4 と同様にしてシートを得、実施例 4 と同様にして剪断強度を測定した。すなわち、実施例 4 で用いた接着性シート 2a の代わりに比較例 1 で得られた接着性シート 2b を用いた粘着性シートを用いて、軟質塩化ビニル樹脂 6 およびポリカーボネート板 3 をそれぞれ図 7 に示すように貼り付けて試験片を得た。

【0072】上記実施例1～4および比較例1～5の剪断強度およびT剥離強度の測定結果を以下の表1に示す。

\*

	剪断強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	T剥離強度 (kgf/20mm幅)
実施例 1	19.5	11.5
実施例 2	20.2	12.0
実施例 3	20.7	12.9
比較例 1	16.5	6.8
比較例 2	製造できず	
比較例 3	粘着性なし	
実施例 4	10.5	---
比較例 4	1.5	---
比較例 5	6.2	---

\* 【0073】  
【表1】

【0074】(実施例5)セピオライト100gの代わりに、平均粒子径7.5μmの多孔質シリカゲル(水沢化学工業社製、商品名:シルビードD-MS1000)100gをフィラーとして用いたこと以外は、実施例1と同様にして部分光重合増粘組成物を得た。得られた組成物の転化率は4.1%であり、そして粘度は2300cpsであった。この組成物を用いて実施例1と同様の方法により接着性シートを得た。得られた接着性シートの残存モノマーは0.1%未満であり、そしてゲル分率は85%であった。この接着性シートを用いて実施例1と同様にして剪断強度およびT剥離強度を測定した。

【0075】(実施例6)ガラス繊維100gの代わりに、平均粒子径2.5μmの中空多孔質シリカ微粒子(鈴木油脂工業社製、商品名:ゴッドボールB-25C)50gをフィラーとして用いたこと以外は、実施例2と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例2と同様の方法により接着性シートを得、実施例1と同様にして剪断強度およびT剥離強度を測定した。

【0076】(実施例7)疎水化処理したガラス繊維100gの代わりに、平均粒子径が0.7μmの沈降性シリカ(水沢化学工業社製、商品名:ミズカシルP-527U)100gをフィラーとして用いたこと以外は、実施例3と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例3と同様の方法により接着性シートを

得、実施例1と同様にして剪断強度およびT剥離強度を測定した。

【0077】(比較例6)ガラス繊維3.95gの代わりに、シルビードD-MS1000(商品名)(水沢化学工業社製)3.95gをトルエン10gに分散させたものを用いたこと以外は、比較例2と同様にして粘着剤溶液(A)100gと混合し、さらにイソシアネート系硬化剤(日本ポリウレタン社製、商品名:コロネートLS55E)4gを混合した。それを離型処理した38μm厚みのPETフィルム上に乾燥後の厚みが100μmになるように塗工し、110℃で5分間乾燥して接着性シートを得た。得られた接着性シートの粘着面には、粒状に凝集したシリカゲルが点在し、その表面には粘着性はなかった。

【0078】(実施例8)実施例1で得られた接着性シートの代わりに、実施例5で得られた接着性シートを用いたこと以外は、実施例4と同様にして粘着性シートを得た。この粘着性シートを用いて実施例4と同様にして剪断強度を測定した。

【0079】上記実施例5～8および比較例6の剪断強度およびT剥離強度の測定結果を以下の表2に示す。

【0080】

【表2】

	剪断強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	T剥離強度 (kgf/20mm幅)
実施例 5	24.0	9.1
実施例 6	18.1	9.5
実施例 7	17.7	10.9
比較例 6	粘着性なし	
実施例 8	11.5	---

【0081】（実施例9）セピオライト100gの代わりに、低密度ポリエチレン微粒子（住友精化社製、商品名：フローセンUF4（平均粒子径：25 $\mu$ m））600gをフィラーとして用いたこと以外は、実施例1と同様にして部分光重合増粘組成物を得た。得られた組成物の転化率は4.1%であり、そして粘度は2300cpsであった。この組成物を用いて実施例1と同様の方法により接着性シートを得た。得られた接着性シートの残存モノマーは0.1%であり、そしてゲル分率は80%であった。この接着性シートを用いて実施例1と同様にして剪断強度およびT剥離強度を測定した。

【0082】（実施例10）ガラス繊維100gの代わりに、シリコン微粒子（東レ・ダウコーニング・シリコン社製、商品名：トレフィルE-600（平均粒子径：5 $\mu$ m））200gをフィラーとして用いたこと以外は、実施例2と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例2と同様の方法により接着性シートを得、実施例1と同様にして剪断強度およびT剥離強度を測定した。

【0083】（実施例11）疎水化処理したガラス繊維100gの代わりに、高密度ポリエチレン微粒子（三井石油化学社製、商品名：ミペロンXM-220（平均粒子径：20 $\mu$ m））500gをフィラーとして用いたこと以外は、実施例3と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例3と同様の方法により接着性シートを得、実施例1と同様にして剪断強度およびT剥離強度を測定した。

【0084】（比較例7）ガラス繊維3.95gの代わりに、シリコン微粒子（東レ・ダウコーニング・シリコン社製、商品名：トレフィルE-600（平均粒子径：5 $\mu$ m））3.95gをトルエン10gに分散させたものを用いたこと以外は、比較例2と同様にして粘着剤溶液（A）およびイソシアネート系硬化剤（日本ポリウレタン社製、商品名：コロネートL55E）と混合したが、シリコン微粒子が凝集沈降してしまい、粘着剤フィルムは得られなかった。

【0085】（実施例12）実施例1で得られた接着性

シートの代わりに、実施例9で得られた接着性シートを用いたこと以外は、実施例4と同様にして接着性シートに粘着剤層をホットラミネートし、粘着性シートを得た。この粘着性シートを用いて実施例4と同様にして剪断強度およびT剥離強度を測定した。

【0086】（実施例13）冷却管、温度計、および攪拌器を備えたセパラブルフラスコに、2-エチルヘキシルアクリレート900g、アクリル酸100g、n-ドデカンチオール0.2g、および酢酸エチル900gを仕込み、窒素ガス雰囲気下で、還流するまで昇温し、20分間保持した後、ベンジルペルオキシド1gを酢酸エチル100gに溶解した溶液を滴下し、4時間反応させた。その後、ベンジルペルオキシド1gを酢酸エチル100gに溶解した溶液を滴下し、さらに3時間反応させた。次いで、トルエン400gを攪拌混合して、粘度12000cpsの粘着剤溶液（B）を得た。固形分は36.4重量%であった。

【0087】この粘着剤溶液（B）100gに、ヘキサメチレンジエチレンウレア（商品名）（相互薬工社製）0.2gを加え、フィラーは加えずに、十分混合攪拌した後、脱泡し、離型処理したPETフィルム上に塗工し、厚み40 $\mu$ mの粘着剤層を形成した。その後、ただちに実施例9で得られた接着性シートの両面に、粘着剤層の粘着面が接触するようにホットラミネートし、図8で示されるような粘着性シートを得た。その後、PETフィルム1、1'を除去し、以下のようにして剪断強度を測定した。

【0088】＜剪断強度＞図9に示すように、幅20mm×長さ20mmの実施例9で得られた粘着性シートの両面に、ステンレス板7（幅50mm×長さ125mm×厚み1mm）を貼り合わせて90℃で24時間にわたって熱老化させた。このようにして試験片を得、この試験片を用いて剪断強度を測定した。引っ張り速度は、50mm/分で行った。

【0089】＜T剥離強度＞図10に示すように、幅20mm×長さ70mmの実施例9で得られた粘着性シートの両面に、厚み300 $\mu$ mのアルミ箔4を貼り付け、

90℃で24時間にわたって熱老化させた。このようにして試験片を得、この試験片を用いてT剥離強度を測定した。引っ張り速度は、200mm/分で行った。

【0090】(実施例14) 2-エチルヘキシルアクリレート950g、アクリル酸50g、n-ドデカンチオール0.2gおよび酢酸エチル900gを用いて実施例13と同様の方法により粘度8900cps、固形分38重量%の粘着剤溶液(C)を得た。この粘着剤溶液(C)を用いて厚み40μmの粘着剤層を形成した。その後、この粘着剤層を実施例9で得られた接着性シート10の両面にラミネートし、実施例13と同様にして剪断強\*

\*度およびT剥離強度を測定した。

【0091】(比較例8) 実施例9で得られた接着性シートの代わりに、比較例1で得られた接着性シートを用いたこと以外は、実施例13と同様にして試験片を得、実施例13と同様の方法により剪断強度およびT剥離強度を測定した。

【0092】上記実施例9～14および比較例7～8の剪断強度およびT剥離強度の測定結果を以下の表3に示す。

【0093】

【表3】

	剪断強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	T剥離強度 (kgf/20mm幅)
実施例 9	20.8	9.8
実施例 10	21.3	9.8
実施例 11	20.7	12.5
比較例 7	製造できず	
実施例 12	8.9	---
実施例 13	15.7	9.8
実施例 14	14.4	11.3
比較例 8	6.5	3.0

【0094】(実施例15) 2-エチルヘキシルアクリレート400g、イソノニルアクリレート500g、N-ビニルピロリドン50g、脂環式エポキシアクリレート(ダイセルヒュルス社製、商品名:サイクロマーA-200)50g、および親水性シリカ(日本アエロジル社製、商品名:アエロジル200)40gを、デイスパーで4時間にわたって1000rpmで攪拌混合し、粘稠な液体を得た。これにポリエチレン微粒子(住友精化社製、商品名:フローセンUF4(平均粒子径:25μm))200g、およびイルガキュア184を0.3gを加え、均一になるまで攪拌混合した後、窒素ガスをパージし、溶存する酸素を除去した。この組成物を用いて厚み約1mmの接着性シートを得た。

【0095】比較例2で得られた粘着剤溶液(A)100gに不均化ロジンエステル(荒川化学社製、商品名:スーパーエステルA-115)10.0g配合し、溶解した後、架橋剤としてコロネートL55E(商品名)を1.5g混合攪拌し、離型処理したPETフィルム上に塗工し、乾燥した。得られたシートを、直ちに、上記接着性シートの両面にホットラミネートして両面粘着テ

プを得た。得られたテープのPETフィルムを除去し、以下の方法により、180°剥離強度を測定した。

【0096】<180°剥離強度>得られた両面粘着テープの片方の面に、コロナ放電処理を施したPETフィルム(厚み38μm)をバックিংフィルムとして貼付し、片面粘着テープとした。被着体として、ポリプロピレン(PP)板(幅50mm×長さ125mm×厚み1mm)に、JIS Z0237の180°引きはがし法に準じて貼付し、180°剥離強度を測定した。

【0097】(比較例9) 不織布を基材とする両面粘着テープ(積水化学工業(株)社製、商品名:セキスイWTテープ#5782)を用いて実施例15と同様にしてPP板に貼付し、180°剥離強度を測定した。

【0098】(比較例10) 上記接着性シートの代わりに、表面をコロナ放電処理したポリエチレン樹脂製フォーム(積水化学工業(株)社製、商品名:ソフトロンIFJ20015(厚み:1.1mm))を用いたこと以外は、実施例15と同様にして粘着テープを得、実施例15と同様の方法により180°剥離強度を測定した。

【0099】(比較例11) ポリエチレン微粒子を用い

なかったこと以外は実施例 15 と同様にして両面粘着テープを得、実施例 15 と同様の方法により 180° 剥離強度を測定した。

【0100】上記実施例 15 および比較例 9～11 の 180° 剥離強度の測定結果を以下の表 4 に示す。

【0101】

【表 4】

	180° 剥離強度 (kgf/20mm幅)
実施例 15	11.3
比較例 9	1.4
比較例 10	1.8
比較例 11	2.5

【0102】(実施例 16) セピオライト 100g の代わり、平均粒子径 40 $\mu$ m のポリメチルメタクリレート (PMMA) 架橋体微粒子 (積水化成工業社製、商品名: テクポリマー MBX-40) 500g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 1 と同様にして部分光重合増粘組成物を得た。得られた組成物の転化率は 4.8% であり、そして粘度は 2500cps であった。この組成物を用いて実施例 1 と同様の方法により接着性シートを得た。得られた接着性シートの残存モノマーは 0.1% 未満であり、そしてゲル分率は 85% であった。この接着性シートを用いて実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0103】(実施例 17) ガラス繊維 100g の代わりに、平均粒子径 20 $\mu$ m のポリスチレン架橋体微粒子 (積水化成工業社製、商品名: テクポリマー SBX-20) 200g をフィラーとして用いたこと以外は、実\*

\* 実施例 2 と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例 2 と同様の方法により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0104】(実施例 18) 疎水化処理したガラス繊維 100g の代わりに、平均粒子径 5 $\mu$ m のポリメチルメタクリレート (PMMA) 微粒子 (積水化成工業社製、商品名: テクポリマー MBX-5) 200g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 3 と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて、実施例 3 と同様の方法により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0105】(比較例 12) ガラス繊維 3.95g の代わりに、平均粒子径 5 $\mu$ m のポリメチルメタクリレート (PMMA) 微粒子 (積水化成工業社製、商品名: テクポリマー MBX-5) 3.95g をトルエン 10g に分散させたものを用いたこと以外は、比較例 2 と同様にして粘着剤溶液 (A) と混合し、さらにイソシアネート系硬化剤 (日本ポリウレタン社製、商品名: コロネート L55E) 4g を混合した。それを離型処理した 38 $\mu$ m 厚みの PET フィルム上に乾燥後の厚みが 100 $\mu$ m になるように塗工し、110℃ で 5 分間乾燥して接着性シートを得た。得られた接着性シートの粘着面には、PMMA 微粒子の凝集物が点在し、その表面の粘着性は不十分であった。

【0106】(実施例 19) 実施例 1 で得られた接着性シートの代わりに、実施例 16 で得られた接着性シートを用いたこと以外は、実施例 4 と同様にして接着性シートをラミネートし、実施例 4 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0107】上記実施例 16～19 および比較例 12 の剪断強度および T 剥離強度の測定結果を以下の表 5 に示す。

【0108】

【表 5】

	剪断強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	T 剥離強度 (kgf/20mm幅)
実施例 16	17.0	8.6
実施例 17	17.4	7.5
実施例 18	17.9	8.0
比較例 12	粘着性不十分	
実施例 19	9.3	---

【0109】(実施例 20) セピオライト 100g の代わり、平均粒子径 3 $\mu$ m の雲母 (コープケミカル社 500) 50g をフィラーとして用いたこと以外は、実施



例 1 と同様にして部分光重合増粘組成物を得た。この組成物を用いて実施例 1 と同様の方法により接着性シートを得た。得られた接着性シートの残存モノマーは 0.1 %未満であり、そしてゲル分率は 83 %であった。この接着性シートを用いて実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0110】（実施例 21）ガラス繊維 100 g の代わりに、平均粒子径 7  $\mu\text{m}$  の雲母（コープケミカル社製、商品名：合成雲母 MK-200（アスペクト比：30））100 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 2 と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例 2 と同様の方法により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0111】（実施例 22）疎水化処理したガラス繊維 100 g の代わりに、平均粒子径 15  $\mu\text{m}$  の雲母（コープケミカル社製、商品名：合成雲母 MK-300（アスペクト比：30））150 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 3 と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例 3 と同様の方法により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

\*

28  
\*【0112】（比較例 13）ガラス繊維 3.95 g の代わりに、平均粒子径 7  $\mu\text{m}$  の雲母（コープケミカル社製、商品名：合成雲母 MK-200（アスペクト比：30））3.95 g をトルエン 10 g に分散させたものを用いたこと以外は、比較例 2 と同様にして粘着剤溶液（A）およびイソシアネート系硬化剤（日本ポリウレタン社製、商品名：コロネート L55E）と混合した。それを、離型処理した 38  $\mu\text{m}$  厚みの PET フィルム上に乾燥後の厚みが 100  $\mu\text{m}$  になるように塗工し、110  $^{\circ}\text{C}$  で 5 分間乾燥して接着性シートを得た。得られた接着性シートの粘着面には、雲母の凝集物が点在し、その表面には粘着性がなかった。

【0113】（実施例 23）実施例 1 で得られた接着性シートの代わりに、実施例 20 で得られた接着性シートを用いたこと以外は、実施例 4 と同様にして接着性シートをラミネートし、実施例 4 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0114】上記実施例 20～23 および比較例 13 の剪断強度および T 剥離強度の測定結果を以下の表 6 に示す。

【0115】

【表 6】

	剪断強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	T 剥離強度 (kgf/20mm幅)
実施例 20	16.7	8.6
実施例 21	21.9	9.7
実施例 22	16.6	8.1
比較例 13	粘着性なし	
実施例 23	10.1	---

【0116】（実施例 24）セピオライト 100 g の代わりに、平均粒子径 45  $\mu\text{m}$  であり、かつ SiO<sub>2</sub> 約 60 重量% および Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 約 38 重量% を含有するフライアッシュバルーン（小野田セメント社製、商品名：マイクロセルズ SL75）300 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 1 と同様にして部分光重合増粘組成物を得た。得られた組成物の転化率は 4.1 % であり、そして粘度は 2300 cps であった。この組成物を用いて実施例 1 と同様の方法により接着性シートを得た。得られた接着性シートの残存モノマーは 0.1 % 未満であり、そしてゲル分率は 85 % であった。この接着性シートを用いて実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0117】（実施例 25）ガラス繊維 100 g の代わ

りに、平均粒子径 40  $\mu\text{m}$  であり、かつ SiO<sub>2</sub> 約 75 重量% および Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 約 15 重量% を含有するシラスバルーン（イチジ化成社製、商品名：ウインライト SC-50）200 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 2 と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例 2 と同様の方法により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0118】（実施例 26）疎水化処理したガラス繊維 100 g の代わりに、平均粒子径 2.4  $\mu\text{m}$  であり、かつ SiO<sub>2</sub> 約 48 重量% および Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 約 40 重量% を含有するアルミノシリケート系微粒子（水沢化学工業社製、商品名：シルトン AMT25）100 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 3 と同様にして光重合

性組成物を得た。この組成物を用いて実施例 3 と同様の方法により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0119】(比較例 14) ガラス繊維 3.95 g の代わりに、平均粒子径 45  $\mu\text{m}$  であり、かつ  $\text{SiO}_2$  約 60 重量%および  $\text{Al}_2\text{O}_3$  約 38 重量%を含有するフライアッシュバールン(小野田セメント社製、商品名:マイクロスルズ S L 75) 3.95 g をトルエン 10 g に分散させたものを用いたこと以外は、比較例 2 と同様にして粘着剤溶液(A)およびイソシアネート系硬化剤(日本ポリウレタン社製、商品名:コロネート L 55 E)と混合した。それを、離型処理した 38  $\mu\text{m}$  厚みの PET フィルム上に乾燥後の厚みが 100  $\mu\text{m}$  になるように塗工し、110℃で5分間乾燥して接着性シートを得た。\*

	剪断強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	T 剥離強度 (kgf/20mm幅)
実施例 24	19.3	10.6
実施例 25	18.4	6.9
実施例 26	17.3	10.1
比較例 14	粘着性なし	
実施例 27	10.5	---

【0123】(実施例 28) セピオライト 100 g の代わりに、ガラスビーズ(東芝パロティーニ社製、商品名: EGB731 (平均粒子径: 25  $\mu\text{m}$ )) 1000 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 1 と同様にして部分光重合増粘組成物を得た。この組成物を用いて実施例 1 と同様の方法により接着性シートを得た。得られた接着性シートの残存モノマーは 0.1% であり、そしてゲル分率は 84% であった。この接着性シートを用いて実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0124】(実施例 29) ガラス繊維 100 g の代わりに、シリカビーズ(洞海化学社製、商品名: M. S. GEL D-50-0A (平均粒子径: 50  $\mu\text{m}$ )) 1000 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 2 と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例 2 と同様の方法により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0125】(実施例 30) 疎水化処理したガラス繊維 100 g の代わりに、表面を疎水化処理したガラスビーズ(東芝パロティーニ社製、商品名: EGB731N (平均粒子径: 20  $\mu\text{m}$ )) 1000 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 3 と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例 3 と同様の方法

\* 得られた接着性シートの粘着面には、フライアッシュバールンが浮いて層分離状態となり、その表面には粘着性がなかった。

【0120】(実施例 27) 実施例 1 で得られた接着性シートの代わりに、実施例 24 で得られた接着性シートを用いたこと以外は、実施例 4 と同様にして接着性シートをラミネートし、実施例 4 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0121】上記実施例 24~27 および比較例 14 の剪断強度および T 剥離強度の測定結果を以下の表 7 に示す。

【0122】

【表 7】

により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0126】(比較例 15) ガラス繊維 3.95 g の代わりに、ガラスビーズ(東芝パロティーニ社製、商品名: EGB731 (平均粒子径: 25  $\mu\text{m}$ )) 3.95 g を用いたこと以外は、比較例 2 と同様にして粘着剤溶液(A)およびイソシアネート系硬化剤(日本ポリウレタン社製、商品名: コロネート L 55 E)と混合したが、ガラスビーズが凝集沈降してしまい、粘着剤層は得られなかった。

【0127】(比較例 16) ガラス繊維 3.95 g の代わりに、表面を疎水化処理したガラスビーズ(東芝パロティーニ社製、商品名: EGB731N) 3.95 g をトルエン 10 g に分散させたものを用いたこと以外は、比較例 2 と同様にして粘着剤溶液(A)およびイソシアネート系硬化剤(日本ポリウレタン社製、商品名: コロネート L 55 E)と混合したところ、均一な分散液が得られた。それを離型処理した 38  $\mu\text{m}$  厚みの PET フィルム上に乾燥後の厚みが 100  $\mu\text{m}$  になるように塗工し、110℃で5分間乾燥して接着性シートを得た。得られた接着性シートの粘着面には、粒状に凝集したガラスビーズが点在し、その表面には粘着性がなかった。

【0128】(実施例 31) 実施例 1 で得られた接着性

シートの代わりに、実施例 28 で得られた接着性シートを用いたこと以外は、実施例 4 と同様にして接着性シートをラミネートし、実施例 4 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0129】上記実施例 28～31 および比較例 15～\*

	剪断強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	T 剥離強度 (kgf/20mm幅)
実施例 28	18.8	14.8
実施例 29	19.8	9.2
実施例 30	20.1	9.3
比較例 15	製造できず	
比較例 16	粘着性なし	
実施例 31	7.5	---

【0131】(実施例 32) セピオライト 100g の代わりに、平均粒子径 20  $\mu$ m であり、かつ表面を疎水化処理したガラスビーズ (東芝パロティーニ社製、商品名: EGB731N (比重 2.6; 平均粒子径: 20  $\mu$ m)) 800g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 1 と同様にして部分光重合増粘組成物を得た。得られた組成物の転化率は 4.2% であり、そして粘度は 2100 cps であった。この組成物を用いて実施例 1 と同様の方法により接着性シートを得た。得られた接着性シートの残存モノマーは 0.1% 未満であり、そしてゲル分率は 85% であった。この接着性シートを用いて、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0132】(比較例 17) 表面を疎水化処理したガラスビーズ (EGB731N (商品名)) 800g の代わりに、表面をグリシジルシラン処理したガラスビーズ (東芝パロティーニ社製、商品名: EGB731B) 800g を用いたこと以外は、実施例 32 と同様にして部分光重合増粘組成物を得た。得られた組成物の転化率は 4.5% であり、そして粘度は 2600 cps であった。この組成物を用いて実施例 1 と同様の方法により接着性シートを得た。得られた接着性シートの残存モノマーは 0.1% 未満であり、そしてゲル分率は 89% であった。この接着性シートを用いて実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

\* 16 の剪断強度および T 剥離強度の測定結果を以下の表 8 に示す。

【0130】

【表 8】

【0133】(実施例 33) ガラス繊維 100g の代わりに、平均粒子径 60  $\mu$ m の中空ガラス微粒子 (旭硝子社製、商品名: セルスター Z-27 (比重 0.27)) の表面をポリジメチルシロキサン処理したものを 50g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 2 と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例 23 と同様の方法により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0134】(比較例 18) 中空ガラス微粒子の表面をポリジメチルシロキサンで処理しなかったこと以外は、実施例 33 と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例 2 と同様の方法により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0135】(実施例 34) 実施例 1 で得られた接着性シートの代わりに、実施例 33 で得られた接着性シートを用いたこと以外は、実施例 4 と同様にして接着性シートをラミネートし、実施例 4 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。

【0136】上記実施例 32～34 および比較例 17～18 の剪断強度および T 剥離強度の測定結果を以下の表 9 に示す。

【0137】

【表 9】

	剪断強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	T 剥離強度 (kgf/20mm幅)
実施例 3 2	2 0 . 2	1 1 . 9
比較例 1 7	1 7 . 4	7 . 3
実施例 3 3	2 0 . 5	9 . 3
比較例 1 8	1 8 . 5	7 . 7
実施例 3 4	1 2 . 1	— — —

【0138】（実施例 35）セピオライト 100 g の代わりに、平均粒子径が 5 μm であり、かつ屈折率が 1.49 であるポリメチルメタクリレート架橋体微粒子（積水化成工業社製、商品名：テクポリマー MBX-5）100 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 1 と同様にして部分光重合増粘組成物を得た。得られた組成物の転化率は 4.9 % であり、そして粘度は 2900 cps であった。この組成物を用いて実施例 1 と同様の方法により接着性シートを得た。得られた接着性シートの残存モノマーは 0.1 % 未満であり、そしてゲル分率は 85 % であった。この接着性シートを用いて実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。さらに、目視にて透明性を評価した。

【0139】（実施例 36）ガラス繊維 100 g の代わりに、平均粒子径が 50 μm であり、かつ屈折率が 1.50 であるシリカ微粒子（洞海化学社製、商品名：M. S. GEL D-50-0A）1000 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 2 と同様にして接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。さらに、目視にて透明性を評価した。

【0140】（実施例 37）疎水化処理したガラス繊維 100 g の代わりに、平均粒子径が 20 μm であり、屈折率が 1.48 であるポリエチルアクリレート架橋体微粒子（積水化成工業社製、商品名：テクポリマー EAX-15）200 g をフィラーとして用いたこと以外は、実施例 3 と同様にして光重合性組成物を得た。この組成物を用いて実施例 3 と同様の方法により接着性シートを得、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強

度を測定した。さらに、目視にて透明性を評価した。

【0141】（比較例 19）テクポリマー MBX-5（商品名）の代わりに、中空ガラス微粒子（旭硝子社製、商品名：セルスター Z-27（平均粒子径：60 μm））50 g を用いたこと以外は、実施例 35 と同様にして接着性シートを得た。目視にて透明性を評価したところ、得られた接着性シートは、真っ白に白濁しており、透明性はなかった。

【0142】（実施例 38）実施例 36 で得られた接着性シートの両方の表面をプライマー処理し、比較例 1 で得られた接着性シートを 100 μm の厚みとなるように重合し、粘着性シートを作成し、上記接着性シートの両面に転写し、表面粘着層を有する粘着性シートとした。ガラス板（幅 25 mm × 長さ 100 mm）に貼り合わせて剪断強度を測定した。また、ガラス板を両面に貼り合わせて透明性を目視にて確認したところ、得られた粘着性シートは透明性があった。

【0143】（比較例 20）テクポリマー MBX-5（商品名）を混合しなかったこと以外は、実施例 35 と同様にして接着性シートを得た。この接着性シートを用いて、実施例 1 と同様にして剪断強度および T 剥離強度を測定した。さらに、目視にて透明性を評価した。

【0144】上記実施例 35～38 および比較例 19～20 の剪断強度および T 剥離強度の測定結果、および透明性の評価を以下の表 10 に示す。

【0145】

【表 10】

	35		36
	剪断強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	T 剥離強度 (kgf/20mm幅)	透 明 性
実施例 3 5	2 1. 2	9. 5	○
実施例 3 6	1 9. 8	9. 2	○
実施例 3 7	1 9. 7	1 2. 1	○
比較例 1 9	1 8. 0	7. 0	×
実施例 3 8	1 7. 5	7. 9	○
比較例 2 0	1 6. 5	6. 8	○

## 【0146】

【発明の効果】本発明によれば、剪断強度および剥離強度などの接着強度に優れた粘着性テープを得ることができ、この粘着性テープを用いることにより構造体などの接合作業を簡便に行うことができる。本発明によればまた、透明性に優れた粘着性テープを得ることができる。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】実施例1において、接着性シートを得る際の、接着性シートおよびPETフィルムの構成を示す断面図である。

【図2】実施例1において、剪断強度を測定する際に用いられる、試験片の断面図である。

【図3】実施例1において、T剥離強度を測定する際に用いられる、試験片の断面図である。

【図4】実施例4において、粘着性シートを得る際の、粘着性シート、粘着剤層およびPETフィルムの構成を示す断面図である。

【図5】実施例4において、剪断強度を測定する際に用いられる、試験片の断面図である。

\*【図6】比較例4において、剪断強度を測定する際に用いられる、試験片の断面図である。

【図7】比較例5において、剪断強度を測定する際に用いられる、試験片の断面図である。

【図8】実施例35において、粘着性シートを得る際の、接着性シート、粘着剤層およびPETフィルムの構成を示す断面図である。

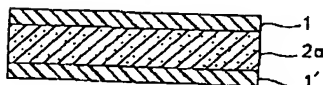
【図9】実施例35において、剪断強度を測定する際に用いられる、試験片の断面図である。

【図10】実施例35において、T剥離強度を測定する際に用いられる、試験片の断面図である。

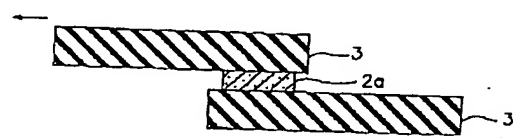
## 【符号の説明】

- |            |            |
|------------|------------|
| 1, 1'      | PETフィルム    |
| 2a, 2b, 2c | 接着性シート     |
| 3          | ポリカーボネート板  |
| 4          | アルミ箔       |
| 5a, 5b     | 粘着剤層       |
| 6          | 軟質塩化ビニル樹脂板 |
| 7          | ステンレス板     |

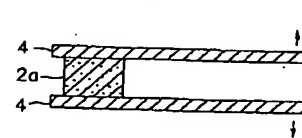
【図1】



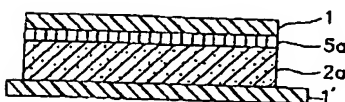
【図2】



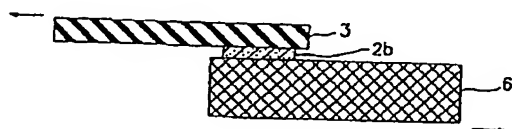
【図3】



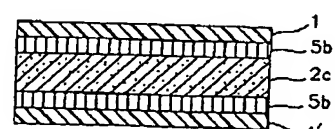
【図4】



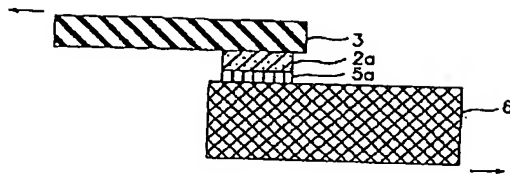
【図6】



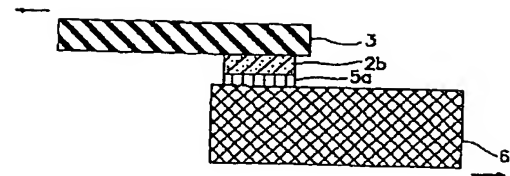
【図8】



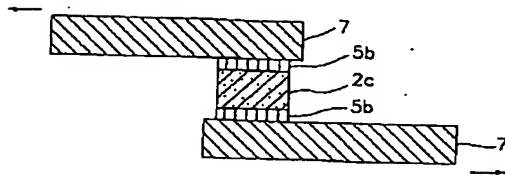
【図5】



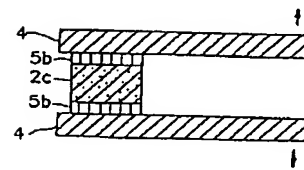
【図7】



【図9】



【図10】



フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>6</sup>  
C 0 9 J 4/00

識別記号

F I  
C 0 9 J 4/00

(58)調査した分野(Int. Cl.<sup>6</sup>, D B 名)

C09J 7/00 - 7/04  
C08F 2/44 - 2/50  
C09J 4/00 - 4/06  
C08F 20/00 - 20/40  
C08F 220/00 - 220/40  
C08L 33/00 - 33/16  
C09J 133/00 - 133/16